

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-343474

(43)公開日 平成11年(1999)12月14日

(51)Int.Cl.⁶
C 0 9 J 163/00

識別記号

F I
C 0 9 J 163/00

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 4 頁)

(21)出願番号 特願平10-151036

(22)出願日 平成10年(1998)6月1日

(71)出願人 000003159

東レ株式会社

東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

(72)発明者 小山内 良隆

千葉県市原市千種海岸2番1 東レ株式会
社千葉工場内

(72)発明者 坂東 巖

千葉県市原市千種海岸2番1 東レ株式会
社千葉工場内

(72)発明者 影石 一二

千葉県市原市千種海岸2番1 東レ株式会
社千葉工場内

(54)【発明の名称】 接着剤組成物

(57)【要約】

【課題】硬化温度をあまり高くすることができない分野での接着性に優れ、長期の使用においても、熱や光で変色や接着力の低下をおこさない接着剤を提供する。

【解決手段】特定のエポキシ樹脂100重量部に対して、グリシジル基と加水分解性アルコキシシラン基を有するオルガノアルコキシシラン化合物、およびアルミニウムキレート化合物を特定量配合した接着剤組成物。

【特許請求の範囲】

【請求項1】エポキシ当量が100～2000のエポキシ樹脂(A)100重量部に対して、一分子中にグリシジル基と加水分解性アルコキシシラン基を有するオルガノアルコキシシラン化合物(B)0.05～100重量部、およびアルミニウムキレート化合物(C)0.01～10重量部配合したことを特徴とする接着剤組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は低温(150℃以下)での硬化性に優れた1液タイプの接着剤組成物に関するものである。特に、蛍光灯や電球型蛍光灯の口金や管球支持部のような金属、ガラス等の無機物とポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂等の有機ポリマーとの複合部材からなり、硬化温度をあまり高くすることができない分野での接着剤組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】エポキシ樹脂を主剤とする接着剤は接着強度、耐熱性などに優れることから広く利用されている。一般に、エポキシ系接着剤はエポキシ樹脂を主剤とし、低温硬化の場合にはポリアミン化合物、ポリサルファイド化合物を、高温での焼き付け硬化の場合には酸無水物を硬化剤として用いられており、2液型として使用される。

【0003】最近では、アルミニウムキレート化合物を併用した硬化技術(特開昭57-42721、特開昭57-90012、特開昭57-133119、特開昭57-133120、特開昭57-133122)が紹介されているが、いずれも硬化温度が高ばかりか硬化にも長時間を要することがあった。また、一液タイプとしては貯蔵安定性に問題があり、接着剤を使用する現場では作業性、貯蔵にはなはだ問題があった。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、上記従来技術の問題点を解決し、貯蔵安定性が良好な低温(150℃以下)での硬化性に優れ、接着性が良好であり、長期の使用においても、熱や光で変色や接着力の低下をおこさない接着剤組成物、とりわけ一液タイプの接着剤組成物を提供するものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】すなわち本発明は、エポキシ当量が100～2000のエポキシ樹脂(A)100重量部に対して、一分子中にグリシジル基と加水分解性アルコキシシラン基を有するオルガノアルコキシシラン化合物(B)0.05～100重量部、およびアルミニウムキレート化合物(C)0.01～10重量部配合したことを特徴とする接着剤組成物、である。

【0006】

【発明の実施の形態】本発明のエポキシ樹脂(A)は、数多く市販されているものの中から任意に選択し、使用

することができる。すなわちこれらには、ポリフェノール型、ポリグリシジリアミン型、アルコール型、エステル型、脂環式、他がある(参考文献:13197の化学商品、化学工業日報社(1997年発行)、923頁～931頁)。これらのエポキシ樹脂は単独、もしくは、2種類以上の混合物であってもよい。十分な硬化性と貯蔵安定性、接着性能を得るために、該エポキシ樹脂のエポキシ当量は100～2000である。エポキシ等量が100未満では、接着強度が弱くなり、2000を越えると、十分な硬化性を得られない。

【0007】エポキシ樹脂(A)が、エポキシ基以外の官能基として水酸基を有するとき硬化性、接着性がさらに良くなるので好ましい。

【0008】本発明の、一分子中にグリシジル基と加水分解性アルコキシシラン基を有するオルガノアルコキシシラン化合物(B)としては、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリオブトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 β -(3,4-エポキシクロヘキシル)エチルジメトキシシランなどがあげられ、これらの化合物は単独、もしくは、2種類以上の混合物であってもよい。またこれらの化合物の部分縮合物であってもよい。

【0009】オルガノアルコキシシラン化合物(B)は、エポキシ樹脂(A)100重量部に対し、0.05～100重量部配合され、このとき硬化性、貯蔵安定性、接着性等諸性能に優れた接着剤が得られる。0.05重量部未満では、硬化性が低下し、100重量部を越えると接着性が悪化するため好ましくない。

【0010】本発明のアルミニウムキレート化合物(C)としては、アルミニウムエチルアセトアセテートジソプロピレート、アルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)、アルミニウムトリス(アセチルアセテート)、アルミニウムビスエチルアセトアセテートモノアセチルアセトネート等があり、これらは単独、もしくは、2種類以上の混合物であってもよい。該化合物は、本願の硬化性樹脂組成物が硬化するためのスターターの機能を果たすものである。

【0011】貯蔵中に、不用意に機能を発揮しないよう対応するキレート化剤を安定剤として添加することはよく知られており、本発明でも好適に実施される。すなわち、貯蔵安定性を向上するために、アセチルアセトン、アセト酢酸メチル、アセト酢酸エチル等を添加するのが好ましい。

【0012】アルミニウムキレート化合物(C)は、エポキシ樹脂(A)100重量部に対し、0.01～10重量部使用する。0.01重量部未満では、接着剤の硬化性が悪化し、架橋が遅れ、接着剤の接着力、耐溶剤性などが低下する。10重量部を越えると、エポキシ樹脂

に十分溶解することができなくなり、逆に硬化性が悪化したり、接着剤の貯蔵安定性が悪化する。

【0013】本願の組成物は、エポキシ樹脂（A）と、オルガノアルコキシシラン化合物（B）、アルミキレート化合物（C）が均一に混合されれば、どのような手段で製造しても目的を達成することができる。

【0014】一例として、エポキシ樹脂（A）を攪拌しながらアルミキレート化合物（C）を少量ずつ仕込み、溶解する。次いで、オルガノアルコキシシラン化合物（B）を添加し、均一になるまで攪拌を続ければ製造できる。この製造工程中に必要であれば加熱することもかまわないが、常温でも十分に製造は可能であり、製造の安定性（製造中に硬化反応が進行しゲル物が生成しないために）、貯蔵安定性の観点からは、20～50℃で製造するのが好ましい。

【0015】さらに、組成物に親水性有機溶剤を含む希釈液を添加し、均一になるまで攪拌混合することにより、低温での硬化性をより高めることができる。

【0016】別の有効な方法は、オルガノアルコキシシラン化合物（B）を以下のように製造した後、その他の原料と配合することにより、同様に低温での硬化性をより高めることができる。

【0017】すなわち、攪拌装置の付いた容器に所定量のオルガノアルコキシシラン化合物（B）を計量し、攪拌しながら、親水性有機溶剤を含む希釈液を添加しオルガノアルコキシシラン化合物（B）の希釈液をあらかじめ作製しておく方法である。

【0018】ここに、親水性有機溶剤とは、20℃の水に体積比で10%以上溶解する有機溶剤を指し、メチルアルコール、エチルアルコール、イソプロピルアルコール、n-ブチルアルコール等のアルコール類、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールブチルエーテル等のグリコールエーテル類等がある。これらの溶剤は単独、もしくは、2種類以上の混合物であってもよい。

【0019】親水性有機溶剤を含む希釈液を配合することにより、組成物の硬化性、貯蔵安定性が向上する。親水性有機溶剤を含む希釈液は接着剤の表面硬化だけが促進されるのを防止するため、オルガノアルコキシシラン化合物（B）100重量部に対し、100重量部以下で使用されるのが好ましい。

【0020】さらに、希釈液が親水性有機溶剤100重量部に対し、100重量部以下の水（組成物の貯蔵安定性を向上するため、好ましくは25℃でのPHが6.8以下のイオン交換水）を含むことにより、低温での硬化性がより向上する。

【0021】本発明の組成物は、組成物のままで、ある

いは、フィラーを配合し、すなわち、必要に応じ二酸化チタン、カーボンブラック、アルミペースト等の顔料や、良く知られている添加剤（レベリング剤、顔料分散剤、沈降防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤（HALS）、消泡剤等）、希釈用の溶剤を配合し、使用することができる。また必要であれば、その他の改質用樹脂、例えば、ポリブタジエンゴム（PBD）、エチレンプロピレンジエンゴム（EPDM）、ネオプレンブタジエンゴム（NBR）、アクリル樹脂、ポリスチレン等の重合系ポリマー、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリブチレンテレフタレート（PBT）、ナイロン（NY）等の縮合系ポリマーを配合し使用することもできる。

【0022】本願の接着剤が適用できる基材には、ABS、ポリスチレン、ポリカーボネート、ナイロン等のプラスチック、鉄、アルミニウム、トタン、ブリキ等の金属、および、これらが化成処理されたものおよびカチオンまたはアニオン電着塗装を施されたもの、ガラス、モルタル、セメント、石綿セメント、石綿セメントバーライト、煉瓦、瓦、スレート等の無機材料等がある。

【0023】以下、実施例で詳細に説明する。

【0024】なお、特に断りがなければ、部数は重量部を、組成比は重量%を示すものとする。

【0025】

【実施例】実施例1

5Lのプラネタリーミキサーにエピコート828（エポキシ当量184～194のエポキシ樹脂、油化シェルエポキシ（株）の製品）900g、エピコート1004（エポキシ当量875～975のエポキシ樹脂、油化シェルエポキシ（株）の製品）100gを仕込み、攪拌して均一な液状とする。次いで、アルミキレートA（W）（アルミニウムキレート化合物（アルミニウムトリス（アセチルアセテート）、川研ファインケミカル（株）の製品）50gを仕込み、攪拌して均一に溶解する。

【0026】これに、あらかじめ混合し、均一な溶液としておいたオルガノアルコキシシラン化合物の希釈液（＝SH-6040（3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、東レ・ダウコーニング・シリコン（株）の製品）／イソプロピルアルコール／イオン交換水（＝90/9/1））500gを添加し、均一になるまで攪拌、混合し、実施例1の接着剤組成物を製造した。

【0027】実施例2

5Lのプラネタリーミキサーにエピコート1007（エポキシ当量1750～2200のエポキシ樹脂、油化シェルエポキシ（株）の製品）1000g、トルエン667gを仕込み、攪拌して均一な液状とする。次いで、アルミキレートA（W）（アルミニウムキレート化合物（アルミニウムトリス（アセチルアセテート）、川研ファインケミカル（株）の製品）50gを仕込み、攪拌し

て均一に溶解する。

【0028】これに、あらかじめ混合し、均一な溶液としておいたオルガノアルコキシシラン化合物の希釈液(=SH-6040(3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、東レ・ダウコーニング・シリコーン(株)の製品)/イソプロピルアルコール/イオン交換水(=90/9/1))500gを添加し、均一になるまで攪拌、混合し、実施例1の接着剤組成物を製造した。

【0029】実施例3

2Lのプラネタリーミキサーにエポコート828(エポキシ当量184~194のエポキシ樹脂、油化シェルエポキシ(株)の製品)1000g仕込み、攪拌する。次いで、アルミキレートA(W)(アルミニウムキレート化合物(アルミニウムトリス(アセチルアセテート)、川研ファインケミカル(株)の製品)50gを仕込み、攪拌して均一に溶解する。

【0030】これに、あらかじめ混合し、均一な溶液としておいたオルガノアルコキシシラン化合物の希釈液(=SH-6040(3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、東レ・ダウコーニング・シリコーン(株)の製品)/イソプロピルアルコール/イオン交換水(=90/9/1))500gを添加し、均一になるまで攪拌、混合し、実施例1の接着剤組成物を製造した。

【0031】実施例4

アルミキレートA(W)の配合量を1gとする以外は、実施例1と同様にして実施例4の接着剤組成物を製造した。

【0032】比較例1

オルガノアルコキシシラン希釈液の配合量を0.4gと*

*する以外は実施例1と同様にして、比較例1の接着剤組成物を製造した。

【0033】比較例2

アルミキレートA(W)の配合量を0.05gとする以外は、実施例1と同様にして比較例2の接着剤組成物を製造した。

【0034】実施例、比較例の組成物を用いて接着剤としての試験を行った。結果を表1に示す。なお、各評価は次の方法により測定および判定を行うものとする。

10 【0035】1. 接着強度(JIS K 6850に準拠する)

試験片にアルミニウム板を使用し、接着剤組成物を塗布した後、120℃で10分間加熱、硬化させたものを試験に供した。接着強度が50mPa以上を合格とする。

【0036】2. 耐熱性

接着強度の測定と同様にして作製したテストピースを150℃で150日間耐熱試験を行った。この後接着強度を測定した。耐熱試験後の接着強度が50mPa以上、接着強度の保持率が90%以上の場合に合格とする。

20 【0037】3. 耐熱変色性

接着剤をガラス板上に均一に塗布し、120℃で10分間加熱硬化する。これを150℃で5ヶ月間耐熱試験し、試験前後での色相の変化を目視により評価した。判定は、

○ 色相の変化がない。合格。

△ やや黄変しているが、実用上問題ないと判断される。合格。

× 著しく変色している。不合格。

【0038】

30 【表1】

試験項目	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2
接着強度 (mPa)	120	80	180	65	48	42
耐熱性						
接着強度 (mPa)	135	110	220	85	40	33
保持率 (%)	113	138	122	131	83	78
耐熱変色性	○	○	○	△	×	×

【0039】

【発明の効果】本発明の接着剤組成物は、低温(150℃以下)での硬化性に優れ、接着性が良好であり、長期の使用においても、熱や光で変色や接着力の低下をおこさない。とりわけ、蛍光灯や電球型蛍光灯の口金や管球※

※支持部のような金属、ガラス等の無機物とポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂等の有機ポリマーとの複合部材からなり、硬化温度をあまり高くすることができない分野に最適である。

DERWENT-ACC-NO: 2000-102285

DERWENT-WEEK: 200825

COPYRIGHT 2009 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Adhesive composition that has
excellent curability below 150
Celcius and excellent durability
after having cured

INVENTOR: BANDO I; KAGEISHI K ; OSANAI Y

PATENT-ASSIGNEE: TORAY FINE CHEM KK[TORA] , TORAY
IND INC[TORA]

PRIORITY-DATA: 1998JP-151036 (June 1, 1998)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
JP 11343474 A	December 14, 1999	JA
JP 4069283 B2	April 2, 2008	JA

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL- DATE
JP 11343474A	N/A	1998JP- 151036	June 1, 1998
JP 4069283B2	Previous Publ	1998JP- 151036	June 1, 1998

INT-CL-CURRENT:

TYPE	IPC DATE
CIPP	C09J163/00 20060101
CIPP	C09J163/00 20060101

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 11343474 A**BASIC-ABSTRACT:**

NOVELTY - A novel adhesive composition. (P) contains 0.05-100 pts. wt. of organoalkoxysilane compound (A) having both glycidyl gp. and hydrolyzable alkoxysilane gp. in a mol. and 0.01-10 pts. wt. of aluminium chelate compound (B) to 100 pts. wt. of epoxy resin (C) having an epoxy equiv. of 100-2,000.

USE - (P) is suitable for mutually bonding various members composed of metals, glass, and organic polymers.

ADVANTAGE - (P) is suitably applied for bonding at such a condition that the temperature can not be raised above 150 °C. And cured prods. exhibit long term durability without deterioration in colour and bonding strength due to heat and/or light.

TITLE-TERMS: ADHESIVE COMPOSITION CURE BELOW
DURABLE AFTER

DERWENT-CLASS: A21 A26 A81 G03

CPI-CODES: A05-A01E; A06-A00E1; A08-D01; A12-B01C; A12-B01L; G03-B01; G03-B02E2; G03-B04;

ENHANCED-POLYMER-INDEXING: Polymer Index [1.1]
 018 ; G1570*R G1558
 D01 D11 D10 D23 D22
 D31 D42 D50 D69 D73
 D83 F47 7A; G1161
 G1150 G1149 G1092 D01
 D11 D10 D19 D18 D32
 D50 D76 D93 F32 F30
 R00470 9523; H0022
 H0011; P1898*R P0464
 D01 D10 D11 D18 D19
 D22 D42 D76 F34 F47;
 M9999 M2073; K9665;
 L9999 L2391; L9999
 L2073; P0475;

Polymer Index [1.2]
 018 ; ND01; ND04;
 K9574 K9483; K9552
 K9483; K9529 K9483;
 Q9999 Q6644*R; N9999
 N5721*R; B9999 B5301
 B5298 B5276; B9999
 B4262 B4240; B9999
 B4615 B4568 K9847;
 B9999 B4682 B4568;
 K9745*R; B9999 B4988*R
 B4977 B4740;

Polymer Index [1.3]
 018 ; G2813 D01 D11
 D10 D23 D22 D31 D42
 D50 D73 D89 F47 F34

F86 F87 R05222 30044;
A999 A033; A999
A157*R; A999 A760;

Polymer Index [1.4]
018 ; D01 D11 D10 D50
D61*R D93 F23 A1 3A;
A999 A146;

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: 2000-030572

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to an adhesive composition excellent in the hardenability in low temperature (150 ** or less) 1 liquid type. In particular, it consists of a combined member of inorganic substances, such as metal like the cap of a fluorescent lamp or an electric bulb type fluorescent lamp, or a bulb supporter, and glass, and organic polymer, such as polyester resin and polycarbonate resin, and is related with the adhesive composition in the field which cannot make curing temperature not much high.

[0002]

[Description of the Prior Art]The adhesives which use an epoxy resin as base resin are widely used from excelling in adhesive strength, heat resistance, etc. Generally, epoxy adhesive uses an epoxy resin as base resin, and in the case of cold cure, in baking hardening of polyamine compound and a polysulfide compound at an elevated temperature, the acid anhydride is used as a hardening agent, and it is used as a two-component type.

[0003]Although the hardening art (JP,57-42721,A, JP,57-90012,A, JP,57-133119,A, JP,57-133120,A, JP,57-133122,A) which used the aluminum chelate compound together is introduced these days, Not only high but hardening might take the long time to curing temperature in each case. As a 1 liquid type, there was a problem in storage stability, and there was a problem in workability and storage very much at the spot which uses adhesives.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]Also in [the purpose of this invention solves the problem of the above-mentioned conventional technology, storage stability is excellent in the hardenability in good low temperature (150 ** or less), and its adhesive property is good, and] long-term use, They are an adhesive composition which causes neither discoloration nor the fall of adhesive strength with heat or light, and a thing which especially provides a 1 liquid type

adhesive composition.

[0005]

[Means for Solving the Problem]Namely, as for this invention, a weight per epoxy equivalent receives epoxy resin (A)100 weight section of 100-2000, the organoalkoxysilane compound (B) 0.05 - 100 weight sections which have a glycidyl group and a hydrolytic alkoxysilane group in a monad, and an adhesive composition carrying out aluminum chelate compound (C) 0.01-10 weight-section combination -- it comes out.

[0006]

[Embodiment of the Invention]Out of what is marketed, the epoxy resin (A) of this invention can be chosen arbitrarily, and can be used. That is, there are a polyphenol type, a poly glycidyl amine type, an alcohol type, an ester type, alicyclic, and others in these (reference: the chemicals goods of 13197, Chemical Daily (1997 issue), 923 pages - 931 pages). These epoxy resins may be independence or two or more kinds of mixtures. In order to obtain sufficient hardenability and storage stability, and adhesion performance, the weight per epoxy equivalents of this epoxy resin are 100-2000. By less than 100, epoxy equivalent weight cannot acquire sufficient hardenability, if adhesive strength becomes weak and exceeds 2000.

[0007]Since hardenability and an adhesive property become still better when it has a hydroxyl group as functional groups other than an epoxy group, an epoxy resin (A) is preferred.

[0008]As an organoalkoxysilane compound (B) which has a glycidyl group and a hydrolytic alkoxysilane group in [of this invention] a monad, Gamma-glycidoxypopyltrimetoxysilane, gamma-glycidoxy propyltriethoxysilane, gamma-glycidoxy propyl triisopropoxy silane, gamma-glycidoxypopylmethyldietoxysilane, beta-(3,4-epoxycyclohexyl) ethyl dimethoxysilane, etc. may be raised, and these compounds may be independence or two or more kinds of mixtures. It may be the partial condensate of these compounds.

[0009]0.05-100 weight-section combination of the organoalkoxysilane compound (B) is carried out to epoxy resin (A)100 weight section, and the adhesives which were excellent in many performances, such as hardenability, storage stability, and an adhesive property, at this time are obtained. In less than 0.05 weight sections, since an adhesive property will get worse if hardenability falls and 100 weight sections are exceeded, it is not desirable.

[0010]As an aluminum chelate compound (C) of this invention, Aluminum ethylacetoacetate diisopropylate, aluminum tris (ethylacetoacetate), There may be aluminum tris (acetyl acetate), aluminum bis-ethylacetoacetate monoacetyl acetate, etc., and these may be independence or two or more kinds of mixtures. This compound achieves a starter function for the hardenability resin composition of this application to harden.

[0011]Adding as stabilizer the chelating agent which corresponds during storage so that a function may not be exhibited carelessly is known well, and this invention is also carried out suitably. That is, in order to improve storage stability, it is preferred to add an acetylacetone,

methyl acetoacetate, ethyl acetoacetate, etc.

[0012]An aluminum chelate compound (C) carries out 0.01-10 weight-section use to epoxy resin (A)100 weight section. In less than 0.01 weight sections, the hardenability of adhesives gets worse, bridge construction is overdue, and the adhesive strength of adhesives, solvent resistance, etc. fall. If ten weight sections are exceeded, it becomes impossible to dissolve in an epoxy resin enough, and hardenability will get worse conversely or the storage stability of adhesives will get worse.

[0013]If an organoalkoxysilane compound (B) and aluminum chelate compound (C) are uniformly mixed with an epoxy resin (A), no matter it may manufacture the constituent of this application by what means, it can attain the purpose.

[0014]As an example, agitating an epoxy resin (A), aluminum chelate compound (C) is taught every in small quantities, and it dissolves. Subsequently, an organoalkoxysilane compound (B) is added, and if churning is continued until it becomes uniform, it can manufacture. It does not care about heating, if required in this manufacturing process, and also at ordinary temperature, enough, manufacture is possible and it is preferred to manufacture at 20-50 ** from a viewpoint of the stability (in order that a hardening reaction may advance and a gel thing may not generate during manufacture) of manufacture and storage stability.

[0015]The hardenability in low temperature can be improved more by carrying out agitation mixing until it adds the diluent which contains a hydrophilic organic solvent in a constituent and becomes uniform.

[0016]Another, effective method can improve the hardenability in low temperature more in a similar manner by blending with other raw materials, after manufacturing an organoalkoxysilane compound (B) as follows.

[0017]That is, it is the method of adding the diluent containing a hydrophilic organic solvent and producing the diluent of the organoalkoxysilane compound (B) beforehand, measuring and agitating the organoalkoxysilane compound (B) of the specified quantity in the container to which the agitating device was attached.

[0018]A hydrophilic organic solvent refers to the organic solvent which dissolves in 20 ** water not less than 10% by a volume ratio here, Alcohols, such as methyl alcohol, ethyl alcohol, isopropyl alcohol, and n-butyl alcohol, Ethylene glycol monomethyl ether, ethylene glycol monoethyl ether, There is glycol ether, such as ethylene glycol monobutyl ether, propylene glycol monomethyl ether, propylene glycol monoethyl ether, and propylene glycol butyl ether. These solvents may be independence or two or more kinds of mixtures.

[0019]The hardenability of a constituent and storage stability improve by blending the diluent containing a hydrophilic organic solvent. As for the diluent containing a hydrophilic organic solvent, it is preferred to be used by 100 or less weight sections to organoalkoxysilane compound (B)100 weight section in order to prevent only the case hardening of adhesives

from being promoted.

[0020]When a diluent contains the water (PH in 25 ** is 6.8 or less ion exchange water preferably in order to improve the storage stability of a constituent) of 100 or less weight sections to hydrophilic organic solvent 100 weight section, the hardenability in low temperature improves more.

[0021]The constituent of this invention with a constituent, Blend a filler, namely, if needed Or a titanium dioxide, Paints, such as carbon black and aluminium paste, and the additive agents (a leveling agent, a pigment agent, an antissettling agent, an ultraviolet ray absorbent, light stabilizer (HALS), a defoaming agent, etc.) known well and the solvent for dilution can be blended and used. If required, other resin for refining, for example, polybutadiene rubber (PBD), Ethylene propylene diene rubber (EPDM), neoprene butadiene rubber (NBR), Condensed system polymer, such as polymerization system polymer, such as an acrylic resin and polystyrene, polyethylene terephthalate (PET), polybutylene terephthalate (PBT), and nylon (NY), can also be blended and used.

[0022]In the substrate which can apply the adhesives of this application, ABS, polystyrene, polycarbonate, Metal, such as plastics, such as nylon, iron, aluminum, galvanized iron, and tin, And there are inorganic materials, such as that to which the thing to which chemical conversion of these was carried out and a cation, or anion electropainting was performed, glass, mortar, cement, an asbestos cement, asbestos-cement perlite, brick, a tile, and a slate, etc.

[0023]Hereafter, an example explains in detail.

[0024]If there is no notice in particular, number of copies shall show a weight section and composition ratio shall show weight %.

[0025]

[Example]the planetary mixer of Example 15L -- Epicoat 828 (the epoxy resin of the weight per epoxy equivalents 184-194.) it stirs and uniform [900 g of products of Oil recovery Shell Epoxy and Epicoat 1004 (epoxy resin / of the weight per epoxy equivalents 875-975 /, product of Oil recovery Shell Epoxy) 100g are taught, and] -- suppose that it is liquefied. Subsequently, aluminum chelate A (W) (50 g of aluminum chelate compounds (aluminum tris (acetyl acetate), product of Kawaken Fine Chemicals Co., Ltd.) are taught and stirred, and it dissolves uniformly.)

[0026]the diluent (= SH-6040 (3-glycidoxypropyltrimetoxysilane.)) of the organoalkoxysilane compound which was beforehand mixed to this and was used as the uniform solution at it 500 g of the product / isopropyl alcohol / ion exchange water of Dow Corning Toray Silicone, Inc. (=90/9/1) were added, it stirred and mixed until it became uniform, and the adhesive composition of Example 1 was manufactured.

[0027]it stirs and uniform [Epicoat 1007 (epoxy resin / of the weight per epoxy equivalents

1750-2200 /, product of Oil recovery Shell Epoxy) 1000g and 667 g of toluene are taught to the planetary mixer of Example 25L, and] -- suppose that it is liquefied. Subsequently, aluminum chelate A (W) (50 g of aluminum chelate compounds (aluminum tris (acetyl acetate), product of Kawaken Fine Chemicals Co., Ltd.) are taught and stirred, and it dissolves uniformly.)

[0028]the diluent (= SH-6040 (3-glycidoxypopyltrimetoxysilane.)) of the organoalkoxysilane compound which was beforehand mixed to this and was used as the uniform solution at it 500 g of the product / isopropyl alcohol / ion exchange water of Dow Corning Toray Silicone, Inc. (=90/9/1) were added, it stirred and mixed until it became uniform, and the adhesive composition of Example 1 was manufactured.

[0029]Epicoat 828(epoxy resin [of the weight per epoxy equivalents 184-194], product of Oil recovery Shell Epoxy)1000g is taught to the planetary mixer of Example 32L, and it stirs. Subsequently, aluminum chelate A (W) (50 g of aluminum chelate compounds (aluminum tris (acetyl acetate), product of Kawaken Fine Chemicals Co., Ltd.) are taught and stirred, and it dissolves uniformly.)

[0030]the diluent (= SH-6040 (3-glycidoxypopyltrimetoxysilane.)) of the organoalkoxysilane compound which was beforehand mixed to this and was used as the uniform solution at it 500 g of the product / isopropyl alcohol / ion exchange water of Dow Corning Toray Silicone, Inc. (=90/9/1) were added, it stirred and mixed until it became uniform, and the adhesive composition of Example 1 was manufactured.

[0031]The adhesive composition of Example 4 was manufactured like Example 1 except the loadings of example 4 aluminum chelate A (W) being 1 g.

[0032]The adhesive composition of the comparative example 1 was manufactured like Example 1 except the loadings of a comparative example 1 organoalkoxysilane diluent being 0.4 g.

[0033]The adhesive composition of the comparative example 2 was manufactured like Example 1 except the loadings of comparative example 2 aluminum chelate A (W) being 0.05 g.

[0034]The examination as adhesives was done using the constituent of an example and a comparative example. A result is shown in Table 1. Each evaluation shall perform measurement and a judgment by the following method.

[0035]1. Adhesive strength (based on JIS K 6850)

The examination was presented with what was heated and stiffened for 10 minutes at 120 **, after using the aluminum plate for the specimen and applying an adhesive composition. Adhesive strength considers 50 or more mPa as success.

[0036]2. The heat test was done for the test piece produced like measurement of heat-resistant adhesive strength for 150 days at 150 **. Adhesive strength was measured after this. The adhesive strength after a heat test considers it as success, when the retention of 50 or

more mPa and adhesive strength is not less than 90%.

[0037]3. Apply thermochromism adhesives uniformly on a glass plate, and carry out heat cure for 10 minutes at 120 **. The heat test of this was done for five months at 150 **, and viewing estimated change of the hue in examination order. A judgment is O. There is no change of hue. Success.

** -- although it turns yellow a little, it is judged that it is satisfactory practically. Success.

x -- it has discolored remarkably. Rejection.

[0038]

[Table 1]

試驗項目	實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	比較例 1	比較例 2
接着強度 (mPa)	1 2 0	8 0	1 8 0	6 5	4 8	4 2
耐熱性						
接着強度 (mPa)	1 3 5	1 1 0	2 2 0	8 5	4 0	3 3
保持率 (%)	1 1 3	1 3 8	1 2 2	1 3 1	8 3	7 8
耐熱變色性	○	○	○	△	×	×

[0039]

[Effect of the Invention]The adhesive composition of this invention is excellent in the hardenability in low temperature (150 ** or less), and its adhesive property is good and it causes neither discoloration nor the fall of adhesive strength with heat or light also in long-term use. It is the best for the field which especially consists of a combined member of inorganic substances, such as metal like the cap of a fluorescent lamp or an electric bulb type fluorescent lamp, or a bulb supporter, and glass, and organic polymer, such as polyester resin and polycarbonate resin, and cannot make curing temperature not much high.

[Translation done.]